

[English Translation of Excerpt]

[Reference 1 cited against Japanese Patent Application 2005-026950]

Laid-Open Japanese Application H01-095194 A

Laid-Open Date: April 13, Year of Heisei-01 (1989)

Int.Cl.4: C10M159/12, C08G73/02, C10L1/22, C10M133/16, -133/56, -141/08, -141/10/C10M159/12 etc.

Number of Inventions: 1, Gazette in total 7 pages

Japanese Patent Application S62-251638

Filing Date: October 7, Year of Showa-62 (1987)

Applicant: Asahi Denka Kogyo, K.K. (JP)

Inventors: Tamiji KAMAKURA, Toshiaki OKAMOTO, Kazuaki

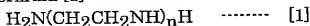
YANAGIHARA, Aritoshi FUKUSHIMA and Masanori KONISHI (all of JP)

Title of Invention: NOVEL OIL-SOLUBLE ASH-FREE DISPERSANT

--- (omitted) ---

2. Claims

[Claim 1] An oil-soluble ash-free dispersant, containing a compound obtained by the reaction of a polyamine having an average molecular weight of 170~2000, which is obtained by the addition of 0.5mol or more of acrylonitrile to the N atom in a compound represented by the following formula [1]:

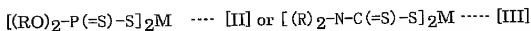


(wherein $n = 1 \sim 10$) and the following hydrogenation thereof, and/or a polyamine obtained by once or more repeating the addition of further acrylonitrile to the polyamine and the hydrogenation thereof with hydrocarbon-substituted succinic anhydride.

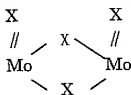
[Claim 2] An oil-soluble ash-free dispersant according to Claim 1, wherein the polyamine has a molecular weight of 300~1100, and primary amino groups occupy 30% or more based on the total amino groups in the polyamine, and tertiary amino groups occupy 35% or less.

[Claim 3] An oil-soluble ash-free dispersant according to Claim 2, wherein the hydrocarbon-substituted succinic anhydride is succinic anhydride having polybutenyl groups having an average molecular weight of 500~2000.

[Claim 4] A dispersant according to any of Claims 1~3, wherein the dispersant further contains at least either of lubricants represented by the following formula [II] or [III]:



[wherein R's [respectively] denote a hydrocarbon group having 1~20 carbon atoms or a hydrocarbon group containing or not containing an ether group, a thioether group or a carboxyl group, which may be mutually the same or different, M denotes Zn or the following:



(wherein X's are either the same or different, respectively denoting O or S).
--- (omitted) ---

[Manufacturing Example 1]

Under nitrogen stream and at 40°C, 456g (8mol) of acrylonitrile was dropped into 292g (2mol) of triethylene tetramine over 2 hours, and subsequently reaction was run for 5 hours at the temperature. Then, the temperature was raised to 96°C over 2 hours, then at the same conditions, reaction was run for 2 hours, and finally, a nitrile composition was obtained under vacuum. Then, this nitrile composition was placed in an autoclave, and was subjected to reduction for 30 minutes under the presence of Raney nickel catalyst (3% as it is) and conditions including the hydrogen pressure of 75kg/cm², the partial ammonia pressure of 8kg/cm² and the temperature of 150°C, and 750g of polyamine was obtained. This polyamine showed analytical values including the amine value of 1160mg KOH/g, about 50% of primary amine and respectively 30% and 20% of secondary amine and tertiary amine. The measurement according to gel permeation chromatography showed that it had the average molecular weight of about 350.

--- (omitted) ---

[Example 1]

Dissolved in 100mL of toluene was 11.7g (0.083mol) of the polyamine obtained in Manufacturing Example 1, and dropped over 15 minutes into the solution was 106g of polybutenyl succinic anhydride having the polybutenyl group with the molecular weight of 960. Then, the temperature was raised, water generated was removed as toluene was being refluxed, and reaction was run for 2 hours. Finally, under the vacuum of 5mmHg, the temperature was raised to 140°C, and toluene was distilled off to obtain a highly viscous

liquid. This highly viscous liquid had the nitrogen content of 3.3%, and was identified to be polybutenyl succinic imide having the strong absorption of imide at 1701cm⁻¹ in the infrared absorption spectrum.

--- (omitted) ---

[Example 12]

Compounds obtained in respective Examples were combined with commercial ash-free dispersant and ZDTP for the measurement of their abrasion inhibition effect on a high speed 4 ball tester. Results are summarized in Table 4.

Measuring conditions:

Concentration: Compound obtained in Example: 2%

Commercial dispersant: 2%

ZDTP [1.1% of Zinc dithiophosphate (1000ppm as Zn)]

Temperature: 80°C

Load: 40kg

Rotation: 1800rpm

Base oil: 150 neutral oil

--- (omitted) ---

[Table 4]

		Average diameter of abrasive trace on solid ball after 30min.
Example 1	+ZDTP (C6 secondary)	0.34

--- (omitted) ---

⑮ 公開特許公報(A) 平1-95194

⑯ Int.Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

⑰ 公開 平成1年(1989)4月13日

C 10 M 159/12

C 08 G 73/02

C 10 L 1/22

NTC

6926-4H

8016-4J

C-6683-4H ※審査請求 未請求 発明の数 1 (全7頁)

⑱ 発明の名称 新規油溶性無灰分散剤

⑲ 特 願 昭62-251638

⑳ 出 願 昭62(1987)10月7日

㉑ 発 明 者 鎌 倉 民 次 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社内

㉒ 発 明 者 岡 本 俊 明 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社内

㉓ 発 明 者 柳 原 和 明 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社内

㉔ 発 明 者 福 島 有 年 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社内

㉕ 出 願 人 旭電化工業株式会社 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号

㉖ 代 理 人 弁理士 曾我 道照 外4名

最終頁に続く

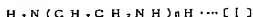
明 細 書

1. 発明の名称

新規油溶性無灰分散剤

2. 特許請求の範囲

1. 一般式

(ここに、 $n=1\sim 10$)

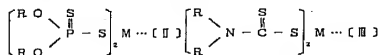
の化合物に、アクリロニトリルを[I]中のNに対して0.5モル以上付加し、その後水素置換無水こはく酸との反応で得られる化合物を含む油溶性無灰分散剤。

2. ポリアミンの分子量が300~1100であり、該ポリアミン中の全アミノ基に対し、一級アミノ基が30%以上、三級アミノ基が35%以下である特許請求の範囲第1項記載の油溶

性無灰分散剤。

3. 炭化水素置換無水こはく酸が、平均分子量500~2000のポリブテン基を有する無水こはく酸である特許請求の範囲第1項または第2項記載の油溶性無灰分散剤。

4. 分散剤がさらに下記一般式[II]または[III]の少なくとも一方の溶剤



(ここに、RはC₁~C₁₀の炭化水素基またはエーテル基、チオエーテル基またはカルボキシ基を含むまたは含まない炭化水素基で、同一でも異なっても良く、MはZまたは



(XはOまたはSであり、同一でも異なっても良い)を表す)

を含む特許請求の範囲第1項から第3項までのいずれか1項に記載の分散剤。

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、潤滑剤添加剤および液体燃料油添加剤として有用な新規な無灰分散剤に関するものである。とくに本発明はスラッジ分散性、酸化防止性に優れ、潤滑剤中の各種添加剤の効果を高める性能を有する無灰分散剤に関するものである。

〔従来の技術および問題点〕

炭化水素油および各種合成油或は燃料油に使用される無灰分散剤は既に数多く知られている。これらの多くは高分子量のカルボン酸とアミン類との反応物であり、この高分子量のカルボン酸としては、炭化水素置換コハク酸またはコハク酸無水物が知られている。例えば米国特許第3,172,892には炭化水素置換コハク酸無水物とエチレンアミンの反応物が、また米国特許第3,018,247には同じく炭化水素置換コハク酸無水物とN,N-ジアルキルアミノアルキルアミンの反応物が、無灰分散剤として開示されている。これらの無灰分散剤の作用機構は、例えば内燃機関用潤滑油において

できず、極性基、非極性基のバランスが非常にせまい範囲のものしかできなかった。

したがって、本発明の目的は、優れた分散性能、酸化防止性能を有し、極性基、非極性基のバランスを自由にとることができ、各種他添加剤と相乗効果を有する無灰分散剤を提供することにある。

〔問題点を解決するための手段〕

本発明者らは、上記問題点を解決するために、鋭意研究した結果本発明に到達した。即ち本発明は、一般式〔I〕



(ここに、 $n=1\sim 10$)

で表されるポリエチレンポリアミンに、アクリロニトリルを〔I〕中のNに対して、0.5モル以上付加し、その後水素添加することにより得られるポリアミンおよび/またはこのポリアミンにさらにアクリロニトリルの付加、水素添加を1回以上繰り返すことによって得られるポリアミンであって、平均分子量が1700~2000のポリアミンと、炭化水素置換無水コハク酸との反応で得られ

は、生成する酸の中和作用、スラッジアプリケーションの可溶性作用、スラッジの分散作用等であると言われている。この目的のため、現在大量のコハク酸イミド系分散剤が使用されているが、最近この分散剤に対する要求性能が増々厳しくなっている。即ち、エンジンの小型高性能化に伴うエンジンオイルの劣化、排ガス規制のためのEGR装置による“スス”の増加、都市部での“発進停止”運転による低温スラッジの生成等の問題である。

また、従来知られている無灰型分散剤は原料アミンとして一級アミノ基がその分子中に1個または2個のものであり、従って炭化水素置換コハク酸の数も1個または2個のものしかできなかった。現在この分散剤に対する要求性能は非常に多様化しており、分子中の極性基、非極性基のバランスが非常に極性基リッチに傾いているものから、非極性基リッチに傾いているものまで幅広く要求されている。しかるに、従来の無灰分散剤は非極性基である炭化水素基が1個または2個のものしか

る化合物を含有する油溶性無灰分散剤に関するものである。

ここで使用されるポリアミンは一級アミノ基を数個から数十個有するものであり、したがって、目的に合わせてほぼ任意の数の炭化水素置換コハク酸イミド基を導入できる。本発明に使用される一般式〔I〕の化合物としては、例えばエチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレントラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミンおよびより高分子量のポリエチレンポリアミンおよびこれらの混合物等が挙げられる。

一般式〔I〕の化合物と、アクリロニトリルの反応は、アクリロニトリルを一般式〔I〕中のNに対して0.5モル以上使用することが望ましい。これ以下の量では、最終的に製造した油溶性の無灰分散剤において充分な性能を得ることができない。

反応温度は始め、50℃以下の低温で2~10時間反応させ、その後100℃で0.5~5時間反応させ、反応を完結させるのが望ましい。

ニトリル付加反応物は水素ガスにより還元し、アミン化される。この場合触媒を使用するのが望ましい。このための触媒としては、例えばニッケル、ランヘーニッケル、白金等通常水添触媒と言われているものが使用できる。還元反応の条件は、例えばランヘーニッケル触媒使用の場合、触媒量0.5〜3%、温度120〜180℃、水素圧力0〜100 kg/cm²位の条件で行われる。還元反応時間は水素の圧力、温度によって異なるが、例えば50〜80 kg/cm²の加圧下、150℃で行う時は30分間程度行えば良い。また、この時アンモニアガスを水素の5〜10%共存させると、より一級アミンの比率が大きいアミンが得られるので好ましい。アンモニアガスを共存させない場合は、分子量分布が広がるが、蒸溜分離によりある分子量範囲に分離したものを、その後の反応の原料とすれば目的物を得ることができる。より高分子量のアミンを得る場合は、このアクリロニトリル付加ならびに水素還元反応をさらに繰り返せば良い。上記のようにして得られた、本発明で

オレフィンまたはポリブテンと無水マレイン酸との反応で得られたものが好ましく、さらに好ましくは、平均分子量500〜2000のポリブテン基を有する無水こはく酸が好ましい。ポリアミンと炭化水素置換無水こはく酸との反応モル比は、ポリアミン中の一級アミノ基に対して炭化水素置換無水こはく酸が2.0モル以下で行うのが良い。炭化水素置換無水こはく酸の量がこれより多い場合は、アミド結合が増加し、鉱油溶解性、分散性能等が悪くなり、また0.2モル以下とした場合は、未反応のアミンが増加し、同じく鉱油溶解性、分散性能等が悪くなる。ただしこの場合は、未反応のアミンを減圧蒸溜により除去すれば性能的には問題がない。

本発明は、潤滑剤添加剤および液体燃料油添加剤として有用な新規な無灰分散剤に関するものである。潤滑剤は通常、基油または基材ならびに用途に応じて添加される各種添加剤とから構成されており、本発明の化合物はこれらの基油、基材、添加剤と適宜併用することができる。とくに本発

明使用するポリアミンは、平均分子量170〜2000、望ましくは300〜1100のものが良い。分子量がこれより小さい場合は充分な性能が得られず、大きい場合は粘度が大きすぎて実用上ハンドリングが困難になる。またこのポリアミンは、一級アミノ基がポリアミン中の全アミノ基の30%以上であることが好ましい。

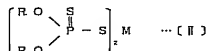
前述のようにして得られたポリアミンに、炭化水素置換無水こはく酸を反応させる。

この反応は、トルエン、ベンゼン、キシレン等の共沸脱水溶媒の存在下に常圧で、あるいは無溶媒の場合は減圧下で、80〜160℃、好ましくは100〜140℃で脱水しながら行えばよい。なお、溶媒の存在下に行った場合は、反応終了後減圧下に溶媒を溜去することが好ましい。

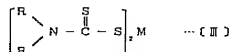
反応時間は適宜選択すればよいが、反応温度は高いほど反応時間は短く、例えば、120℃以上の温度では2時間以内で十分である。

本発明で使用する炭化水素置換無水こはく酸はとくに限定するものではないが、長鎖アルファ-

明の分散剤は、潤滑油に使用された場合スラッジ分散性に優れているのみでなく、酸化防止性を有し、かつ潤滑油に添加される極圧剤、摩耗防止剤、フリクションモデファイヤーとの組合わせでその効果を高める能力を有している。この様な同時に使用可能な添加剤としては、S系添加剤、P系添加剤、Ca系添加剤、Mo系添加剤、Zn系添加剤等がある。一例を挙げると、ジンジチオフォスフェート、酸化オレフィン、酸化リン酸エステル、各種有機ポリブテン化合物、塩素化パラフィン等が挙げられるが、とくに好ましくは、一般式



および/または一般式



(ここで、Rは炭素原子数1〜30のエーテル基、チオエーテル基またはカルボキシ基を含有したものは含有しない炭化水素基で、異なっても同

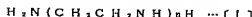
一でも良く、MはZまたは



(X=OまたはSで同一でも異なってもよい))で表される添加剤である。

また、これらの添加剤と本発明の無灰分散剤は、分散剤:添加剤=1:50~50:1、好ましくは1:10~10:1の割合で使用することが好ましい。

すなわち、本発明の無灰分散剤は、一般式



(ここに、n=1~10)

の化合物に、アクリロニトリルを[I]中のNに対して、0.5モル以上付加し、その後水素添加することにより得られるポリアミンおよび/またはこのポリアミンにさらにアクリロニトリルの付加、水素添加を1回以上繰り返すことによって得られるポリアミンであって、平均分子量が170~2000のポリアミンと、炭化水素置換無水こは

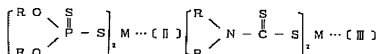
潤滑剤等が挙げられる。

本発明の分散剤を使用した潤滑剤の用途としては、とくに限定はされない。具体的用途としては、自動車およびトラックエンジン、2サイクルエンジン、航空機用エンジン、船舶用および機関用ディーゼルエンジン等を含む火花点火式および圧縮点火式の内燃機関のクランクケース潤滑油、またガソリンエンジン、定置動力エンジンおよびタービン等の潤滑油、自動トランスミッション液体、トランスアクスル潤滑剤、ギヤ潤滑剤、金銭加工潤滑剤、および他の潤滑油やグリース組成物を例示することができる。

製造例-1

窒素気流下40℃でトリエチレンテトラミン29.2g(2モル)にアクリロニトリル45.6g(8モル)を2時間かけて滴下し、その後同温度で5時間反応させた。次いで、2時間かけて96℃まで昇温し、そのまま2時間反応させ最後に減圧しニトリル組成物を得た。次に、このニトリル組成物をオートクレーブ中、ラネーニッケル触媒(有

く酸との反応で得られる油溶性無灰分散剤(a)と、下記一般式[II]または[III]の少なくとも一方の潤滑剤(b)



(ここに、RはC₁~C₃₀の炭化水素基またはエーテル基、チオエーテル基或はカルボキシ基を含むまたは含有しない炭化水素基で、同一でも異なっても良く、MはZまたは



(X=OまたはSであり、同一でも異なっても良い)を表す]

とを、(a):(b)=1:50~50:1、好ましくは1:10~10:1の割合で含有する、潤滑油添加剤組成物として使用することが好ましい。

その他、用途に応じて添加される各種添加剤としては、灰生成清浄剤、腐食および酸化防止剤、流動点降下剤、油性剤、着色剤および着色防止剤、

窒素3%)、水素圧力75kg/cm²、アンモニア分圧8kg/cm²、150℃の条件で30分間還元し、705gのポリアミンを得た。このポリアミンの分析値はアミン価1160mgKOH/g、一級アミンが約50%、二級アミン、三級アミンがそれぞれ30%、20%であった。また、ゲルパーミーエーションクロマトグラフィーによる測定で、平均分子量は約350であった。

製造例-2

製造例-1で製造したポリアミン350g(約1モル)にアクリロニトリル28.5g(5モル)を反応させ、以下、実施例-1と同様の方法でポリアミンを得た。このポリアミンの分析値はアミン価1130mgKOH/g、一級アミン約45%、二級アミン、三級アミンがそれぞれ30%、25%であった。またゲルパーミーエーションクロマトグラフィーによる測定で、平均分子量は約600であった。

実施例-1

製造例-1で製造したポリアミン11.7g(0.033モル)をトルエン100mlに溶解し、

窒素気流中、80℃で、分子量960のポリブテニル基を有するポリブテニルコハク酸無水物106g(0.1モル)を15分で滴下した。次いで温度を上げトルエンを還流させながら生成する水を分離除去し、2時間反応させた。最後に5mmHgの減圧下、140℃まで昇温してトルエンを溜去し高粘度液体を得た。この高粘度液体は、窒素含有量3.3%で、赤外線吸収スペクトルで1701cm⁻¹に強いイミド結合の吸収を持つポリブテニルコハク酸イミドであった。

実施例-2

製造例-1で製造したポリアミン8.8g(0.025モル)と分子量960のポリブテニル基を有するポリブテニルコハク酸無水物106g(0.1モル)を実施例-1と同様の方法で反応し、ポリブテニルコハク酸イミドを得た。窒素含有量は2.3%であった。

実施例-3

製造例-2で製造したポリアミン12.0g(0.02モル)と分子量960のポリブテニル基

比較品B トリエチレンジアミン (分子量980) コハク酸イミド(モノイフ)	2.0	2	0.05以下
比較品C システレンジアミン (分子量980) コハク酸イミド(ビスイフ)	1.2	2	0.43
比較品D トリエチレンジアミン (分子量980) コハク酸イミド(ビスイフ)	2.0	2	0.75

実施例-5

製造例-1で製造したポリアミン35g(0.1モル)と、分子量960のポリブテニル基を有するポリブテニルコハク酸無水物106g(0.1モル)を実施例-1と同様の方法で反応させ、ポリブテニルコハク酸イミドを得た。窒素含有量は7.3%であった。

実施例-6

製造例-1で製造したポリアミン17.5g(0.05モル)と分子量960のポリブテニル基を有するポリブテニルコハク酸無水物106g(0.1モル)を実施例-1と同様の方法で反応し、ポリブテニルコハク酸イミドを得た。窒素含有量

を有するポリブテニルコハク酸無水物108g(0.18モル)を実施例-1と同様の方法で反応し、ポリブテニルコハク酸イミドを得た。窒素含有量は2.8%であった。

実施例-4

実施例1〜3で得られた化合物および従来型無灰分散剤を100ニュートラル油に添加した。この油100gを200mlビーカー中25℃で攪拌しつつ、マイクロビュレットから濃硫酸を滴下し、濁り始めるまでの濃硫酸の滴下量を測定した。これらの結果を第1表に示す。

第1表

	チッソ 含有量 (%)	添加量 (%)	硫酸 可溶化量 (g)
実施例-1	3.3	2	0.83
"-2	2.3	2	1.08
"-3	2.8	2	1.98
比較品A システレンジアミン (分子量980) コハク酸イミド(モノイフ)	2.1	2	0.05以下

は4.2%であった。

実施例-7

製造例-2で製造したポリアミン30.0g(0.05モル)と分子量960のポリブテニル基を有するポリブテニルコハク酸無水物106g(0.1モル)を実施例-1と同様の方法で反応し、ポリブテニルコハク酸イミドを得た。窒素含有量は6.3%であった。

実施例-8

各実施例で得られた化合物および市販品のスラッジ生成度合を、ISO法による油の劣化試験により比較した。

試験方法

500ニュートラル油200mlに各実施例で得られた化合物を溶解し、165.5℃で48時間、炭および銅の存在下で強く攪拌した。次にこの油を約1ml減圧上に滴下し、スラッジの生成度合を観察した。結果を第2表に示す。

第 2 表

	添加量	スラッジ生成
実施例-1	1%	微量あり
2	1	微量あり
3	1	全くなし
5	1	全くなし
6	1	全くなし
7	1	全くなし
比較品 A	1	少量あり
B	1	少量あり
C	1	かなり多い
D	1	かなり多い

実施例-1 1

各実施例で得られた化合物に市販無灰分散剤および有機モリファン化合物を組合わせ、往復振動摩耗試験機で摩耗低減効果を測定した。測定結果を第3表に示す。

測定条件:

濃度: 実施例の化合物 2%

市販分散剤 2%

Mo-DTC[エプア・テンシ・ジオ・スファート(旭電化製グッド・7-100)] 1.0% (Moとして420ppm)

# D + #	0.157
実施例-5 単独	0.189
Mo-DTP 単独	0.101
Mo-DTC 単独	0.158
ベースオイル 単独	0.228

実施例-1 2

各実施例で得られた化合物に市販無灰分散剤およびZDTPを組合わせ、高速四球試験機で摩耗防止効果を測定した。測定結果を第4表に示す。

測定条件:

濃度: 実施例の化合物 2%

市販分散剤 2%

ZDTP (ジシタジチオフェースフェート

1.1% (Znとして1000ppm))

温度: 80℃

荷重: 40kg

回転数: 1800rpm

ベースオイル: 150ニュートラル油

Mo-DTP[エプア・テンシ・ジオ・スファート(旭電化製グッド・7-300)] 0.5% (Moとして450ppm)

温度: 120℃

荷重: 12.2kgf

振動数: 500rpm

振幅: 2.5mm

テストヒース: 材質SUJ-2

上部3/4インチ球、下部平板

ベースオイル: 150ニュートラル油

第 3 表

30分間の平均摩擦係数

実施例-1 + Mo-DTP	0.051
# - 2 + #	0.055
# - 3 + #	0.041
# - 5 + #	0.043
# - 6 + #	0.052
# - 3 + Mo-DTC	0.043
# - 5 + #	0.048
比較品 A + Mo-DTP	0.103
# B + #	0.098
# C + #	0.108
# A + Mo-DTC	0.162

第 4 表

30分後の固定球
摩耗直径平均

実施例-1 + ZDTP(C.2級)	0.34
# - 2 + #	0.38
# - 3 + #	0.31
# - 5 + #	0.34
# - 6 + #	0.33
# - 7 + #	0.42
# - 3 + ZDTP(C.1級)	0.43
# - 5 + #	0.42
比較品 A + ZDTP(C.2級)	0.57
# B + #	0.49
# C + #	0.53
# A + ZDTP(C.1級)	0.68
# D + #	0.74
実施例-3 単独	0.93
ZDTP(C.2級) 単独	0.58
ZDTP(C.1級) 単独	0.78
ベースオイル 単独	0.98

〔発明の効果〕

本発明の効果は、優れた分散性能、酸化防止性能を有し、極性葎、非極性葎のバランスを自由にとることができ、各種他添加剤と相乗効果を有す

る無灰分散剤を提供したことにある。

出願人代理人 弁理士 曾我 道 照



第1頁の続き

⑥Int.Cl. ⁴	識別記号	序内整理番号
C 10 M 133/16		
133/56		
141/08		
141/10		
//C 10 M 159/12		
133/04		
149/10		
129/34		
129/42		
129/93)		
(C 10 M 141/08		
135/18		
133/56		
133/16)		
(C 10 M 141/10		
133/56		
133/16		
137/10)		
C 10 N 30/04		A-6926-4H
30/10		
40/00		
		A-8217-4H
		B-8217-4H
		8217-4H
		8217-4H
		8217-4H
40/04		
40/20		
40/26		
60/02		

⑦発 明 者 小 西 正 則 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社
内